

(12)特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2005 年 7 月 28 日 (28.07.2005)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 2005/069039 A1

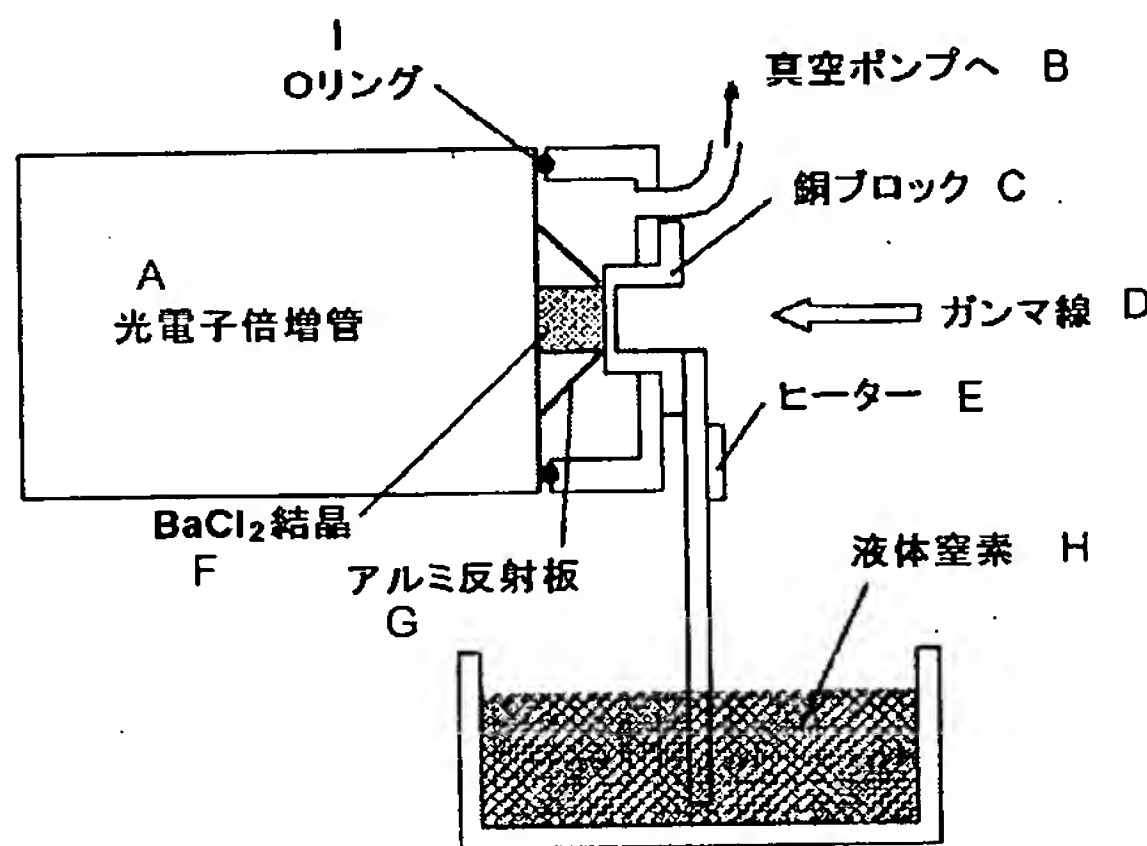
- (51) 国際特許分類: G01T 1/20, 1/202, C09K 11/00, 11/61
(21) 国際出願番号: PCT/JP2005/000210
(22) 国際出願日: 2005 年 1 月 12 日 (12.01.2005)
(25) 国際出願の言語: 日本語
(26) 国際公開の言語: 日本語
(30) 優先権データ:
特願2004-010449 2004 年 1 月 19 日 (19.01.2004) JP
(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 独立
行政法人科学技術振興機構 (JAPAN SCIENCE AND
TECHNOLOGY AGENCY) [JP/JP]; 〒3320012 埼玉県
川口市本町 4-1-8 Saitama (JP).
(72) 発明者; および
(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 村上 英利

- (MURAKAMI, Hidetoshi) [JP/JP]; 〒2710044 千葉県
松戸市西馬橋 2-4 0-2 1-1 0 5 Chiba (JP). 澁
谷 憲悟 (SHIBUYA, Kengo) [JP/JP]; 〒1830045 東京
都府中市美好町 3-4 0-8 Tokyo (JP). 斎藤 晴雄
(SAITO, Haruo) [JP/JP]; 〒1400002 東京都品川区東
品川 2-5-6-9 0 5 Tokyo (JP). 浅井 圭介 (ASAI,
Keisuke) [JP/JP]; 〒9800861 宮城県仙台市青葉区川内
元支倉 3 5 番地 川内住宅 1 0-1 0 7 Miyagi (JP). 本
多 廣郎 (HONDA, Tsuneo) [JP/JP]; 〒2720804 千葉県
市川市南大野 1-4 5-1-3 1 6 Chiba (JP).
(74) 代理人: 下田 昭 (SHIMODA, Akira); 〒1040031 東京
都中央区京橋 3-3-4 京橋日英ビル 4 階 Tokyo (JP).
(81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が
可能): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR,
BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM,
DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU,

[続葉有]

(54) Title: RADIATION DETECTOR ASSEMBLY

(54) 発明の名称: 放射線検出装置



- A PHOTOELECTRON MULTIPLIER
B TO VACUUM PUMP
C COPPER BLOCK
D GAMMA RAYS
E HEATER
F BaCl₂ CRYSTAL
G ALUMINUM REFLECTION SHEET
H LIQ. NITROGEN
I O RING

(57) Abstract: [PROBLEMS] To provide a scintillator crystal comprising a fluorescent component of high luminous efficiency and short damping time, the luminescent wavelength of which lies in the visible light region or in the very vicinity thereof, and provide a radiation detector assembly of high time resolution capability utilizing the scintillator crystal. [MEANS FOR SOLVING PROBLEMS] Barium chloride (BaCl₂) is used as a scintillator crystal. There is provided a radiation detector assembly comprising a barium chloride crystal as a scintillator and a photoelectron multiplier for light receiving from the scintillator, characterized in that light of 250 to 350 nm wavelength is used as the light emitted from the scintillator and that the scintillator is disposed in a low-humidity atmosphere.

(57) 要約: 【課題】 発光効率が高く、減衰時間が短い蛍光成分を持ち、かつその発光波長が可視光域、もしくはそれにより近いところにあるシンチレーター結晶、並びにそれを用いた高い時間分解能を持つ放射線検出装置を提供する。 【解決手段】

シンチレーター結晶として、塩化バリウム (BaCl₂) を用いる。シンチレータとして塩化バリウム結晶を用い、シンチレータからの受光に光電子増倍管を用いた放射線検出装置であって、該シンチレータからの発光として波長が 250~350 nm の光を用い、該シンチレータを低湿度雰囲気置くことを特徴とする放射線検出装置である。

WO 2005/069039 A1



ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.

IE, IS, IT, LT, LU, MC, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

— 国際調査報告書

(84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU,

2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

明 細 書

放射線検出装置

技術分野

- [0001] この発明は、放射線、特にガンマ線の検出装置に関し、更に詳細には時間分解能の極めて早いガンマ線検出装置に関する。

背景技術

- [0002] 従来のガンマ線検出器、特に陽電子消滅ガンマ線(0.511MeV)の寿命測定(Positron Annihilation Lifetime; PAL)においては、これまで必ずしも十分な時間分解能が得られているとはいえなかった。実際の応用において時間分解能は非常に重要である。例えば、医療におけるPET(Positron Emission Tomography:陽電子断層撮影)の時間分解能が向上することによって、時間情報から陽電子の位置の検出精度が上がり、その結果、測定時間の短縮・線源強度の低減などがもたらされ、被験者の負担低減につながる。また材料科学においては、陽電子の寿命測定は格子欠陥の検出に利用されているので、時間分解能の向上は検出感度の向上につながる。
- [0003] このようなガンマ線検出器の時間分解能を向上させるためには、従来よりも減衰時間が短い蛍光成分を持つシンチレーター結晶が不可欠であるが、これまで実用化されているシンチレーター結晶の多くは、発光量子収率が大いだが蛍光の減衰時定数が数百ナノ秒と遅いもの(NaI(Tl)、CsI(Tl)、CsI(Tl)、CsI(Na)、BGO、CdWO₄など)、又は減衰時定数が数ナノ秒ないし30ナノ秒程度と速いが発光量子収率が小さいもの(CsF、CeF₃、CsI、有機シンチレーターなど)である。
- 実用化されているシンチレーターの中ではフッ化バリウム(BaF₂)のみが唯一サブナノ秒の減衰時定数(600ピコ秒)を持っているが(非特許文献1)、その速い蛍光成分の波長は225nmと極めて短く、高価な紫外用の検出器を用いなければならないなど、その取り扱いは大変難しい。
- [0004] 一方、BaCl₂についてX線照射後のケイ光寿命が測定されたことはあったが(非特許文献2)、放射線測定分野においては高速でかつ発光量の大きい材料が求められてきたため、またこの材料には潮解性があり使用が困難であったため、シンチレータ

の材料としてはほとんど検討が行われてこなかった。

また、本発明者らは、理想的なシンチレーターを見出すために、高い発光強度と短い減衰時定数を併せ持ち、かつ安価な検出器が使える可視光域で発光する材料の研究を行ってきた(非特許文献3、特許文献1、特願2003-106277)。

[0005] 特許文献1:特開2003-215251

非特許文献1:M. Laval et al., Nucl. Instrum. Meth., 206(1983)169

非特許文献2:S. E. Derenzo et al., IEEE Nuclear Science Symposium Conference Record 91CH3100-5, vol.1, pp.143-147, 1991

非特許文献3:H. Saito et al., Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A487(2002)612-617

発明の開示

発明が解決しようとする課題

[0006] 本発明の目的は、発光効率が高く、減衰時間が短い蛍光成分を持ち、かつその発光波長が可視光域、もしくはそれにより近いところにあるシンチレーター結晶、並びにそれを用いた高い時間分解能を持つ放射線検出装置を提供することである。

課題を解決するための手段

[0007] シンチレーター結晶として、塩化バリウム(BaCl_2)を用いる。

即ち、本発明は、シンチレータとして塩化バリウム(BaCl_2)結晶を用い、シンチレータからの受光に光電子増倍管を用いた放射線検出装置であって、該シンチレータからの発光として波長が250〜350nmの光を用い、該シンチレータを低湿度雰囲気に置くことを特徴とする放射線検出装置である。このシンチレーター結晶は冷却されることが好ましい。

発明を実施するための最良の形態

[0008] 本発明のシンチレーター結晶を製造する方法として、大型の単結晶を作製できる垂直ブリッジマン法が適切である。これは、結晶の原料を入れた縦長のるつぼを、所定の温度勾配を持つ縦型炉(結晶成長炉)の中でゆっくり降下させ、ルツボ内の融液の下端から固化させて結晶を得ることができる。

塩化バリウム(BaCl_2)は、水に溶解やすく($36\text{g}/100\text{g H}_2\text{O}$ at 20°C)、融点 962°C 、単斜晶系、 923°C で相転移して立方晶になる。通常二水和物として知られ、 121°C で無水物になる。従って、できるだけ含水の少ないものが好ましい。

[0009] 塩化バリウム(BaCl_2)結晶は潮解性があるため、このシンチレータを低湿度雰囲気置く必要がある。低湿度雰囲気とするためには、例えば、この結晶を密閉環境に置き真空を保つか、若しくはそこを窒素や希ガス等の不活性ガスで充填させたり、又は不活性ガスをフローさせてもよい。また、短時間の測定の場合には、単にその近傍に吸湿剤を置くだけでもよい。

[0010] 塩化バリウム(BaCl_2)結晶は放射線、特にガンマ線を照射すると波長 300nm 近傍、即ち $250\sim 350\text{nm}$ の光を放射するため、この放射光を受光するために光電子増倍管を用いる。

光電子増倍管は、光を電子に変換するための光電面と、その電子を増幅する増幅部から構成される。MCP内蔵光電子増倍管を用いてもよい。MCP(マイクロチャンネルプレート)は、ガラスに微細な穴(チャンネル)が空いている素子であり、この両面に電圧(数 kV)をかけると、負電位の側から入射した電子がチャンネルの壁にぶつかりながら2次電子を出して増幅される。MCP内蔵光電子増倍管は、このような素子を内蔵することにより、シングルフォトンの検出を可能とし、応答時間を高速にした光電子増倍管である。このようなMCP内蔵光電子増倍管は市販されており、例えば、浜松ホトニクス株式会社からR3809UシリーズやR5916Uシリーズとして入手可能である。

また BaCl_2 からの発光量は、冷却を行うことで増加する。そのため結晶を冷却することによって、さらなる時間分解能の向上が期待できる。

[0011] BaCl_2 の高速な発光成分は、波長 300nm 近傍に現れる。 BaF_2 シンチレーターではその速い発光成分が 225nm と極めて短く、使用する光電子増倍管は、窓材に高価なUVガラスや合成石英を使用したものでなければならないが、 300nm であればより一般的に用いられているホウケイ酸ガラスでも使用が可能である。また、光電面材料でも、 225nm 近辺でも感度が高いものは限られてくるが、 300nm であれば近紫外～可視域でよく使われる、高感度・低暗電流のバイアルカリを用いた光電子増倍管を使用することが可能である。そのため BaCl_2 は、 BaF_2 にくらべて使用可能な光電子増倍管の

種類が多い。また BaF_2 ほどではないにしても、十分に短い減衰時定数を持つため、これを用いることで高い時間分解能を持った放射線検出装置の実現が期待できる。

[0012] 本発明の放射線検出装置は、上記の塩化バリウム結晶と光電子増倍管以外に、これら部品を結合して、放射線を検出するために適宜必要なスペックを有する装置を組合わせて用いてもよい。例えば、塩化バリウム結晶とMCP内蔵光電子増倍管にデジタルオシロスコープを組み合わせたリ、このデジタルオシロスコープを外部トリガ回路で動作させるよう構成してもよい。更に、検出された波形の処理のために適宜公知の装置を用いることができる。

[0013] 従来は同時計数法を用いた放射線時間計測には、コンスタントフラクションデスクリミネータ(CFD)、時間一振幅変換回路(TAC)、マルチチャンネルアナライザ(MCA)を用いていたが、本発明では上記の装置の代わりに、光電子増倍管から出力される波形を高速なデジタルオシロスコープで保存・数値化し、パーソナルコンピュータに転送して時間差の解析を行う。これは、我々が開発した手法である(非特許文献1)。これにより、極めて高い時間分解能の測定が可能となる。

[0014] この放射線検出装置の測定対象は、陽電子消滅ガンマ線が好ましく、線源はPETに使用されるものとして、C-11、N-13、O-15、F-18、陽電子寿命測定に使用されるものとしてNa-22、Ge-68などが挙げられる。

[0015] 以下、実施例にて本発明を例証するが本発明を限定することを意図するものではない。

製造例1

塩化バリウム(BaCl_2)結晶を以下の手順で作成した。

内径60mmのカーボンルツボに BaCl_2 (Aldrich製、純度 99.999%、成分比 Ba:Cl = 1:2、結晶構造 立方晶系、比重 3.096、屈折率 1.646)を850g入れ、炉にセットする。ロータリーポンプと油拡散ポンプを用いて炉内を真空状態にする(真空度: $\sim 10^{-5}$ Pa)。これをヒーターで加熱し低温乾燥(120℃、24時間)する。

この炉を温度昇温プログラムに従って970℃まで昇温後、24時間保持する。ルツボを引き下げ速度0.3mm/hで、105mm引き下げる(約350時間)。室温まで冷却し(96時間)、徐冷後、取り出し、成形・研磨する。

[0016] このようにして得た BaCl_2 結晶を、シリコングリスを用いて直接光電子増倍管(浜松ホトニクスH3378)の受光面に貼り付け、放射線検出装置とした。 BaCl_2 にはアルミ製反射板をかぶせて発光を効率よく光電子増倍管に導くようにした。また測定は短時間であったので、 BaCl_2 近傍に吸湿剤を置いた。

一方、比較のためシンチレーター結晶にフッ化バリウム(応用光研工業株式会社)を用いた同様の放射線検出装置を用意した。

これらシンチレーター結晶である BaCl_2 は10mm角の立方体、 BaF_2 は直径30mm、厚さ10mmの円柱状であった。

実施例 1

[0017] 図1に示す測定系において、一方の放射線検出装置にシンチレーター結晶として塩化バリウム(BaCl_2)結晶を用いたものを用い、もう一方にはフッ化バリウムを用いたものを用いた。

線源として ^{68}Ge を用いて、陽電子消滅ガンマ線(0.511 MeV)の時間差測定を行った。光電子増倍管からの出力は2つに分岐させ、一方を高速なデジタルオシロスコープ(LeCroy WavePro 7100)に直接入力し、もう一方を波高弁別器、及びコインシデンス回路に入力し、オシロスコープへトリガーをかけた。測定データはパーソナルコンピュータに取り込み、解析を行った。

図2に本装置で行った陽電子消滅ガンマ線の時間差測定の結果を示す。この図から、時間差測定の時間分解能(グラフの半値全幅)は205psであった。

実施例 2

[0018] 次に、実施例1の測定結果から、 BaCl_2 シンチレーターと BaF_2 シンチレーターの測定波形の立ち上がり時間を比較した。その結果を図3に示す。

BaF_2 では900~1300psの間に分布するが、 BaCl_2 ではこれより若干遅く1000~1600psの間に分布することがわかった。このように BaCl_2 は、 BaF_2 にせまる時間応答性を持つシンチレーター結晶であることがわかる。

実施例 3

[0019] 次に、 BaCl_2 シンチレーターを冷却し、実施例1と同様の測定を行った。図4はその結晶の冷却の様子を示す。 BaCl_2 結晶は実施例1と同じ10mm角の立方体で、光

電子倍增管の管面にシリコングリスを用いて直接貼付け、その反対側の面に結晶を冷却するための銅ブロックを接触させた。結晶と銅ブロックの間にもシリコングリスを塗布した。結晶と接触する部分の銅ブロックは、結晶に入射するガンマ線の減衰を最小にするため、できる限り薄くする必要がある。ここでは0.5mmとした。また結晶が結露するのを防ぐため、結晶の周りを真空にした。この装置で、 BaCl_2 結晶を -100°C まで冷却し、測定を行った。図5はその測定結果である。グラフより、時間分解能は198psまで向上した。

[0020] 比較例1

上記実施例1との比較のため、2つのシンチレーター両方に BaF_2 を用いて同様の実験を行った。 BaF_2 シンチレーターはともに直径30mm、厚さ10mmの円柱状のものである。得られた結果を図6に示す。このグラフより、時間分解能は174psであった。

[0021] 以上のように、 BaCl_2 シンチレーターとデジタルオシロスコープを組み合わせた時間差測定を行えば、実用化されている既存のシンチレーターのなかで最も速い減衰定数を持つ BaF_2 と同程度の時間分解能を得ることが可能であり、陽電子寿命測定など、高時間分解能が必要な放射線計測にも十分利用が可能である。

図面の簡単な説明

[0022] [図1]実施例で用いた測定装置の配置を示す図である。

[図2]実施例1の測定結果を示す図である。横軸はチャンネル数(時間)を表し、縦軸はカウント数を表す。

[図3] BaCl_2 シンチレーターと BaF_2 シンチレーターの測定波形の立ち上がり時間を比較を示す図である。

[図4] BaCl_2 シンチレーターの冷却測定の様子を示す図である。銅ブロックは液体窒素を用いて冷却するが、結晶近傍に取付けた温度センサーによってヒーターをコントロールし、所定の温度に保つ。

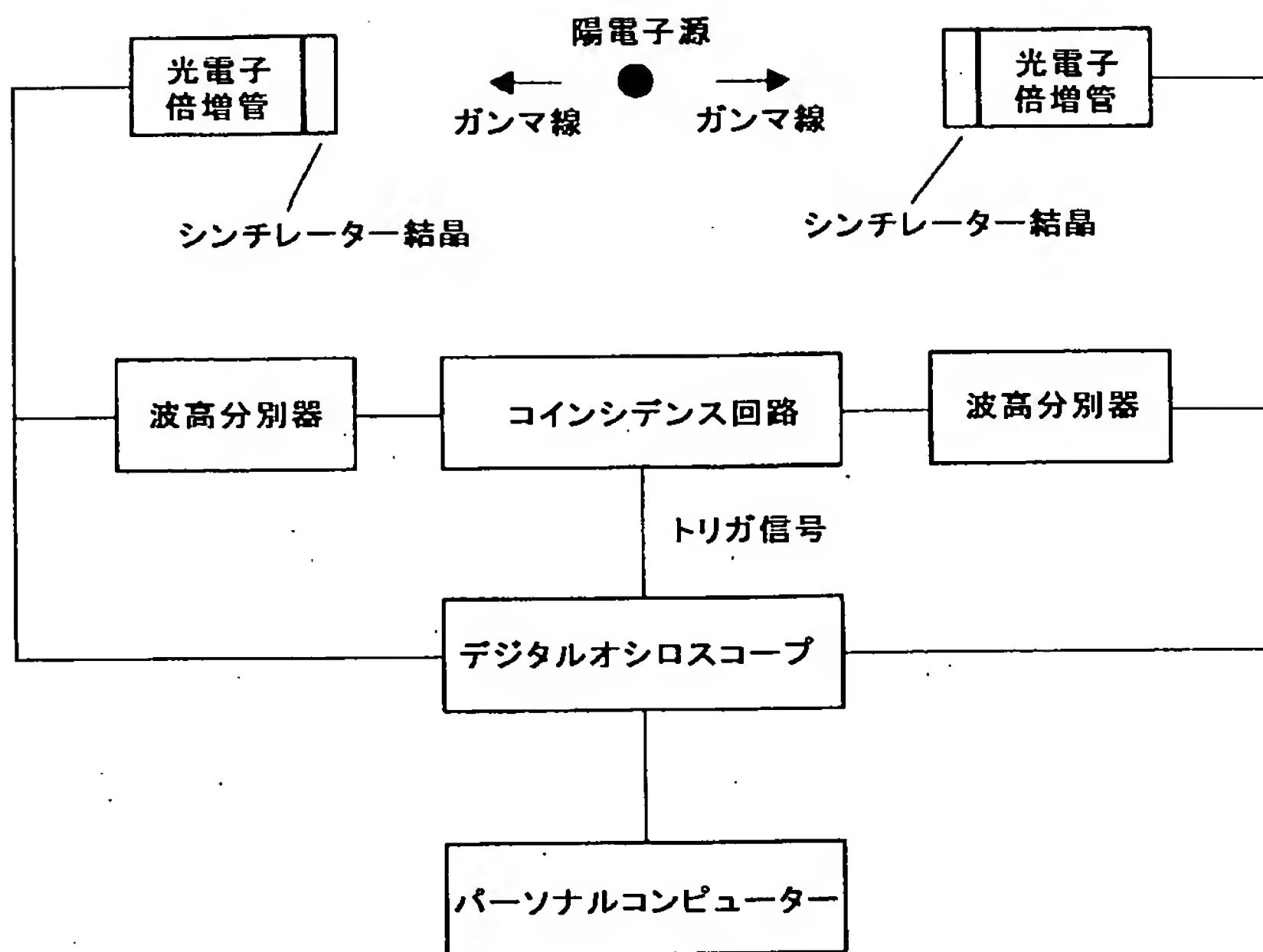
[図5]実施例3の測定結果を示す図である。

[図6]比較例1の測定結果を示す図である。

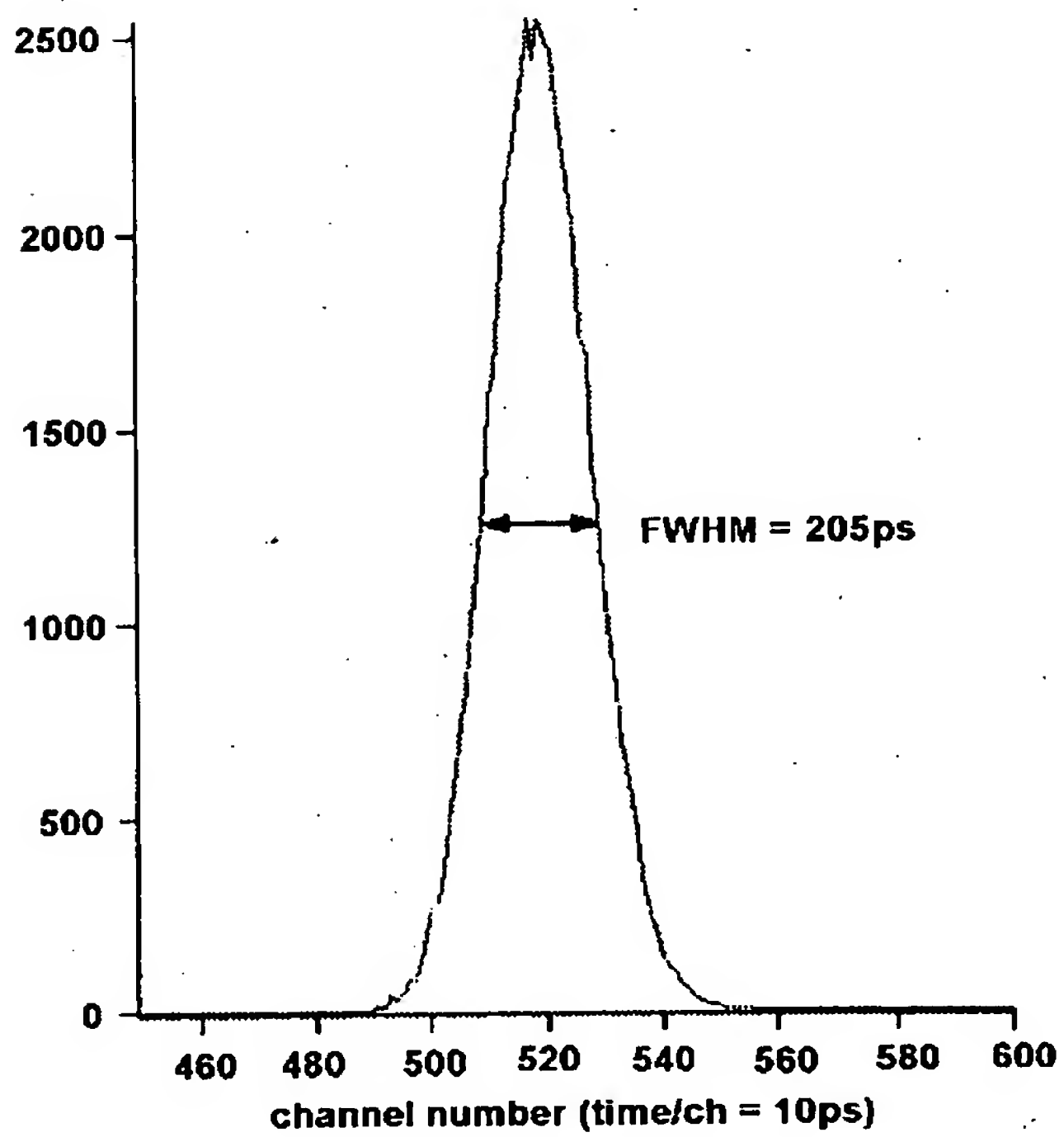
請求の範囲

- [1] シンチレータとして塩化バリウム(BaCl_2)結晶を用い、シンチレータからの受光に光電子増倍管を用いた放射線検出装置であって、該シンチレータからの発光として波長が250〜350nmの光を用い、該シンチレータを低湿度雰囲気置くことを特徴とする放射線検出装置。
- [2] 前記シンチレータ結晶が冷却された請求項1に記載の放射線検出器。
- [3] ガンマ線検出のための請求項1又は2に記載の放射線検出装置。

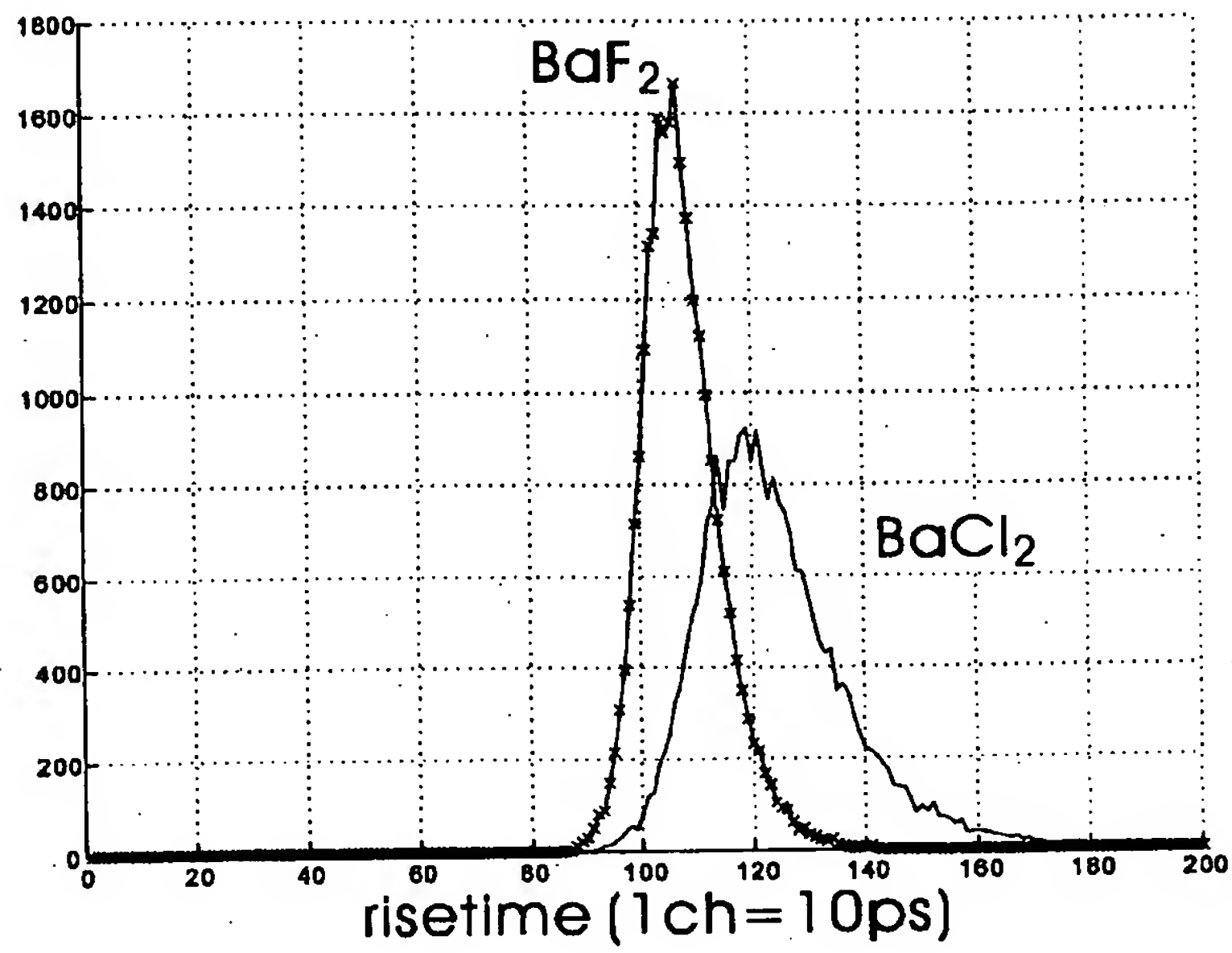
[図1]



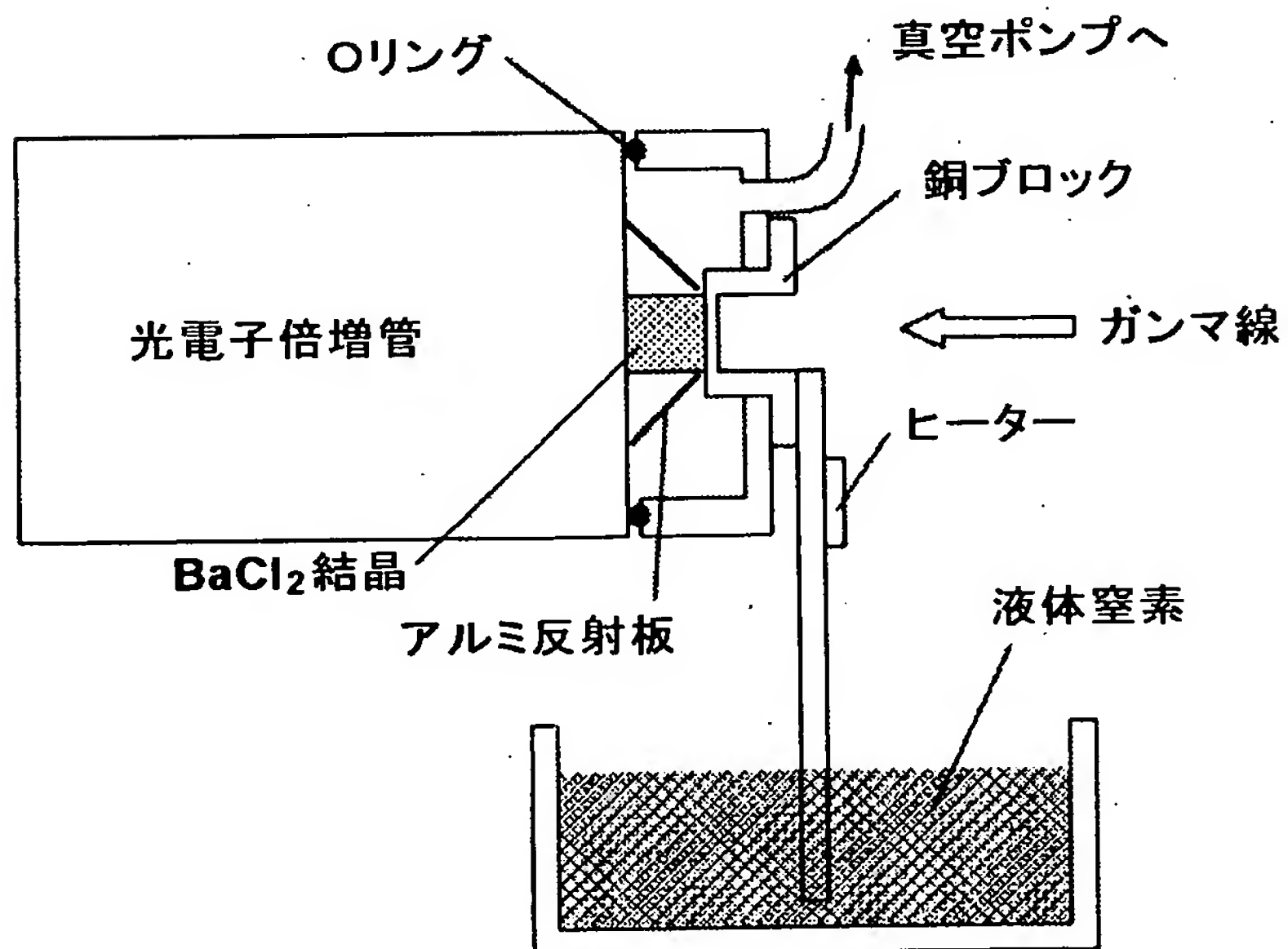
[図2]



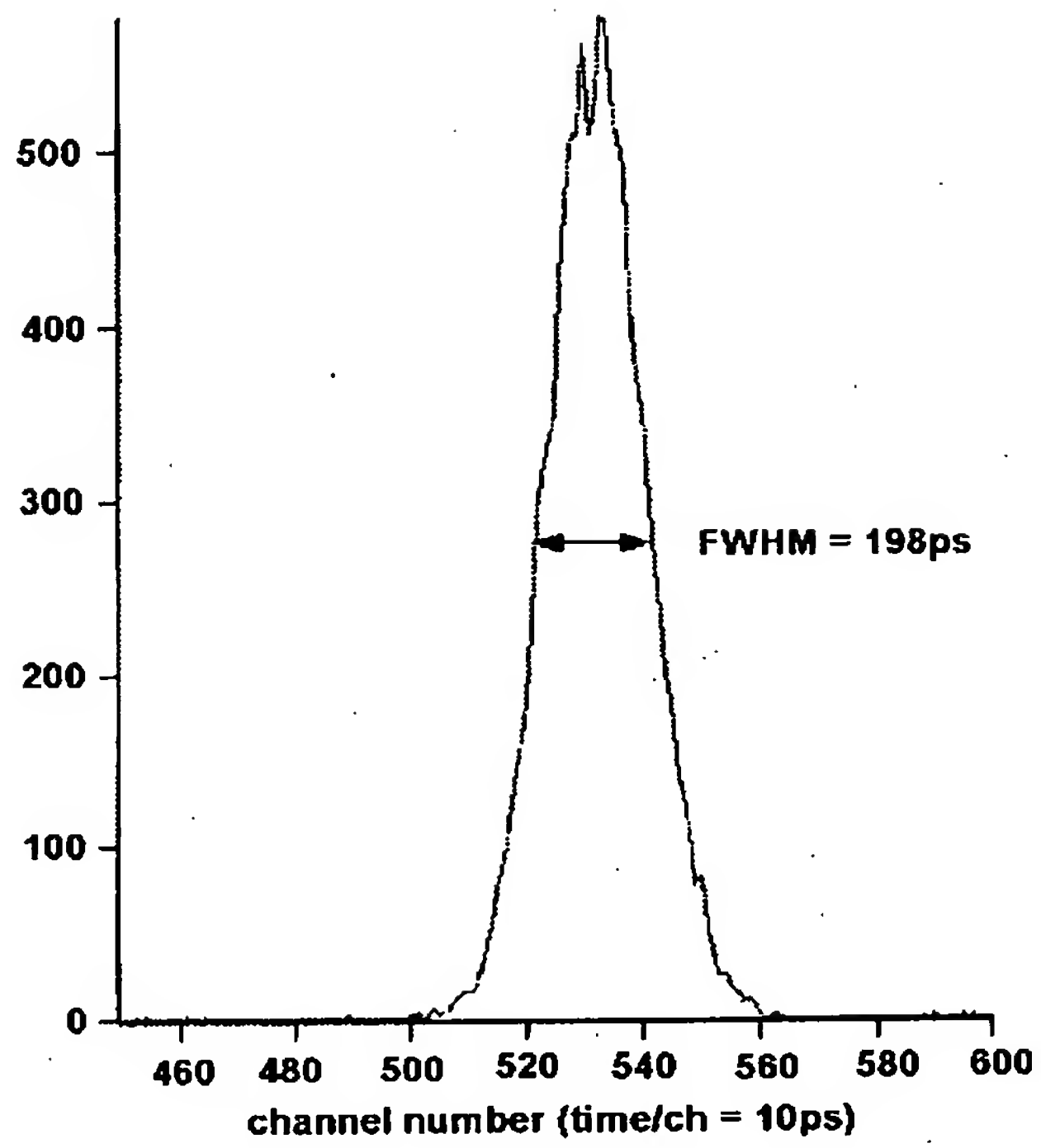
[図3]



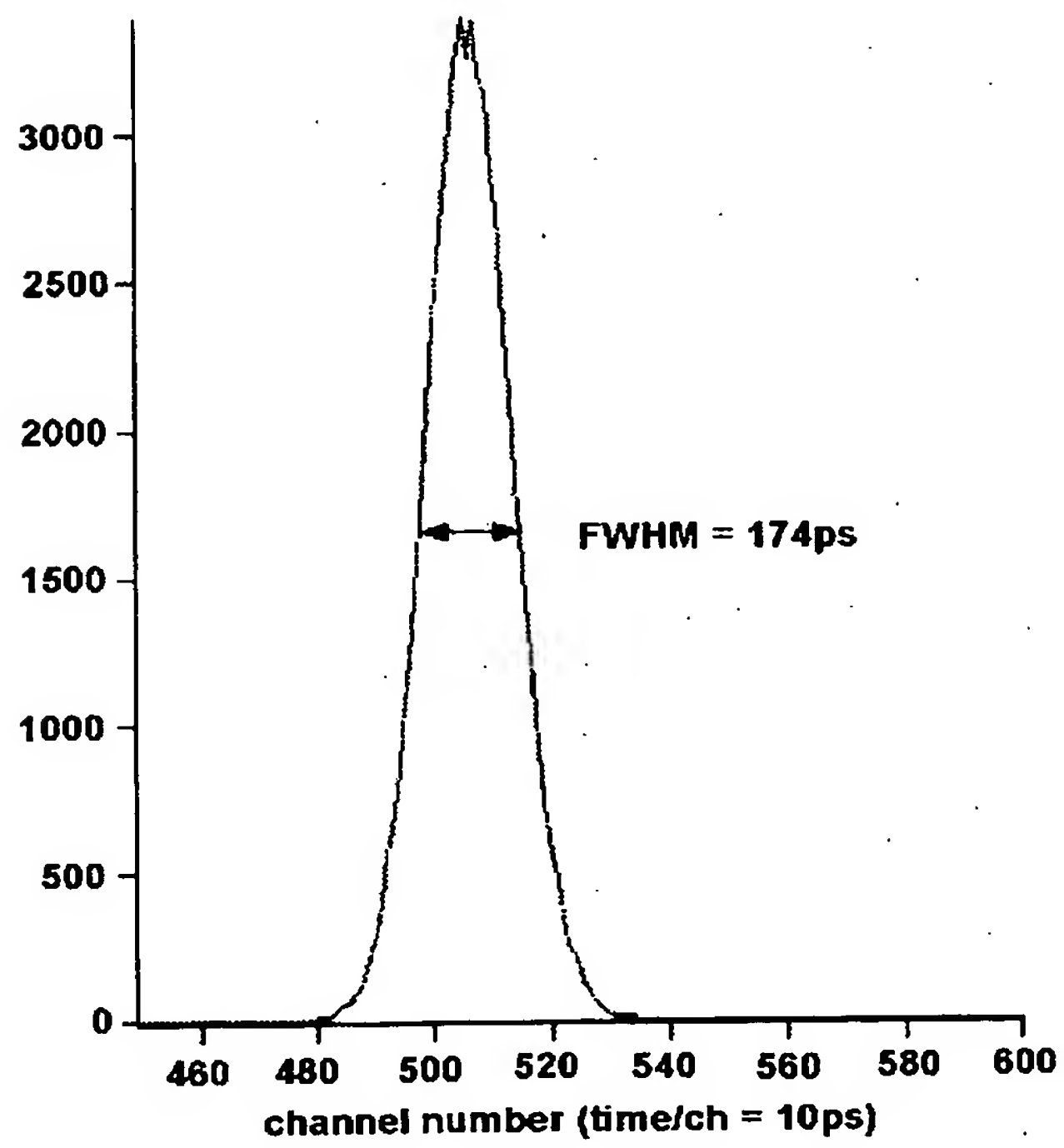
[図4]



[図5]



[図6]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2005/000210

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl⁷ G01T1/20, 1/202, C09K11/00, 11/61

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl⁷ G01T1/20, 1/202, C09K11/00, 11/61

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2005
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2005	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2005

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used).

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2003-149345 A (Japan Science and Technology Corp.), 21 May, 2003 (21.05.03), Full text; all drawings & WO 03/042715 A1 & CA 002432142 A	1-3
A	JP 63-165842 A (Fuji Photo Film Co., Ltd.), 09 July, 1988 (09.07.88), Full text; all drawings (Family: none)	1, 2

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

- "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- "E" earlier application or patent but published on or after the international filing date
- "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

- "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
- "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
- "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
- "&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
05 April, 2005 (05.04.05)

Date of mailing of the international search report
26 April, 2005 (26.04.05)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.